

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 03-273021

(43)Date of publication of application : 04.12.1991

(51)Int.Cl.

C08G 59/30  
C08G 59/56  
C08G 59/66  
C09J163/00  
C09J163/00  
// F16F 15/02

(21)Application number :	02-232698	(71)Applicant :	TORAY CHIOKOOLE KK
(22)Date of filing :	03.09.1990	(72)Inventor :	KURAMOTO HIROYOSHI ONO KATSUMI KATSUHATA KATSUHIKO

(30)Priority

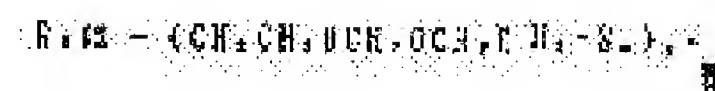
Priority number : 02 34694    Priority date : 15.02.1990    Priority country : JP

## (54) EPOXY RESIN COMPOSITION

(57)Abstract:

**PURPOSE:** To obtain the title composition which can firmly adhere to various adherends, excels in elasticity, has suitable strength and is useful as an elastic adhesive by mixing a specified polysulfide-modified epoxy resin with a mercapto- terminated polysulfide compound and an amine.

CONSTITUTION: An epoxy resin composition containing a polysulfide-modified epoxy resin (a) of formula I, a mercapto-terminated polysulfide compound (b) and an amine (c). In formula I, R1 and R2 are each an organic group containing a bisphenol skeleton, R3 is a group of formula II (wherein (m) is 1-3 and is the average S content in the polysulfide skeleton; and (n) is 1-50 and is the average content of the polysulfide skeletons per molecule). This composition has the excellent chemical resistance, adhesiveness and



wettability inherent in component (a), is improved in elasticity owing to the action of component (b), and can exhibit a high vibration-damping effect over a wide temperature range around room temperature.

AN 1992:256780 HCAPLUS  
 DN 116:256780  
 ED Entered STN: 27 Jun 1992  
 TI Epoxy resin compositions useful for elastic adhesives and vibration dampers  
 IN Kuramoto, Hiroyoshi; Ono, Katsumi; Katsuhata, Katsuhiko  
 PA Toray Thiokol Co., Ltd., Japan  
 SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 10 pp.  
 CODEN: JKXXAF  
 DT Patent  
 LA Japanese  
 IC ICM C08G059-30  
 ICS C08G059-56; C08G059-66; C09J163-00  
 ICA F16F015-02  
 CC 37-6 (Plastics Manufacture and Processing)  
 Section cross-reference(s): 38, 39

FAN.CNT 1

	PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PI	JP 03273021	A	19911204	JP 1990-232698	19900903 <--
PRAI	JP 1990-34694	A1	19900215		

CLASS

PATENT NO.	CLASS	PATENT FAMILY CLASSIFICATION CODES
JP 03273021	ICM	C08G059-30
	ICS	C08G059-56; C08G059-66; C09J163-00
	ICA	F16F015-02
	IPCI	C08G0059-30 [ICM,5]; C08G0059-56 [ICS,5]; C08G0059-66 [ICS,5]; C08G0059-00 [ICS,5,C*]; C09J0163-00 [ICS,5]; F16F0015-02 [ICA,5]
	IPCR	F16F0015-02 [I,C*]; F16F0015-02 [I,A]; C08G0059-00 [I,C*]; C08G0059-30 [I,A]; C08G0059-40 [I,A]; C08G0059-56 [I,A]; C08G0059-66 [I,A]; C09J0163-00 [I,C*]; C09J0163-00 [I,A]

AB The title compns. comprise polysulfide-modified epoxy resins GR1R2R3G (R1, R3 = bisphenol-based organic group; R2 = polysulfide group; G = oxiranyl), SH-terminated polysulfide compds., and amines. A composition containing Flip

50

91, Thiokol LP3 50, modified polyamine (Daito Kuraru X2392) 24, Ph glycidyl ether 9, CaCO3 40, organic-modified bentonite 10, and carbon 1 part and gave cured moldings showing loss coefficient of  $\tan \delta \geq 0.1$  between  $-70^\circ$  and  $+40^\circ$ .

ST epoxy polysulfide adhesive vibration damper; adhesive epoxy polysulfide elasticity; amine epoxy polysulfide elasticity

IT Rubber, polysulfide

RL: USES (Uses)

(epoxy resins containing, for elastic adhesives and vibration dampers)

IT Polysulfides

RL: MSC (Miscellaneous)

(epoxy, elastic adhesives and vibrational dampers)

IT Epoxy resins, miscellaneous

RL: MSC (Miscellaneous)

(polysulfide-, elastic adhesives and vibrational dampers)

IT 129495-75-6, FLEP 10 133108-51-7, Flep 50 141668-64-6, Flep 60

RL: USES (Uses)

(elastic adhesives and vibration dampers containing)

IT 85496-59-9, Epomate N001 141668-57-7, Daitocurar X 2392

RL: USES (Uses)

(epoxy-polysulfides containing, as elastic adhesives and vibration dampers)

DERWENT-ACC-NO: 1992-027457

DERWENT-WEEK: 199204

COPYRIGHT 2008 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: New epoxy! resin compsns. contain polysulphide epoxy!  
resins, polysulphide cpds. contg. mercaptan gps. amine(s)  
and reactive diluents for elastic adhesive compsns.

INVENTOR: KATSUHATA K; KURAMOTO H ; ONO K

PATENT-ASSIGNEE: TORAY THIOKOL CO[THIO]

PRIORITY-DATA: 1990JP-232698 (September 3, 1990)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE
JP 03273021 A	December 4, 1991	JA

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
JP 03273021A	N/A	1990JP-232698	September 3, 1990

INT-CL-CURRENT:

TYPE	IPC	DATE
CIPP	F16F15/02	20060101
CIPS	C08G59/30	20060101
CIPS	C08G59/40	20060101
CIPS	C08G59/56	20060101
CIPS	C08G59/66	20060101
CIPS	C09J163/00	20060101

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 03273021 A

BASIC-ABSTRACT:

Epoxy resin compsns. contg.; (a) polysulphide-modified epoxy resins of formula (I); (b) polysulphide cpds. contg. mercaptane gp. at the end; and (c) amines and opt.; (d) reactive diluents contg. epoxy gp. at the end are new. In (I), R1, R3 = bisphenol skeleton-contg. organic gps.; R2 = polysulphide skeleton of -(CH2CH2OCH2OCH2CH2-Sm)n- (m = 1-3, average content of S of polysulphide skeleton; n = 1-50, average content of polysulphide skeleton of one mol.).

Pref. (a) have a viscosity at 25 deg. C being below 3000 cp. (b) having a viscosity at 25 deg. C being below 2000 cp are pref. used. (b) are used in amts. of 5-200 pts. wt. to 100 pts. wt. of (a). (c) are used in amts. of 0.5-2.0 times the chemical equiv. calculated from epoxy equiv. of (a) and active hydrogen equiv. of (c). (d) are pref. those having a viscosity at 25 deg. C being below 5 cp and are used in amts. of below 50 pts. wt. to 100 pts. wt. of (a).

USE/ADVANTAGE - Resin compsns. are used as elastic adhesive compsns. and vibration proof compsns. Resin compsns. have large adhesive strength, good elasticity and appropriate strength. @ (10pp Dwg.No 0/0)

TITLE-TERMS: NEW POLYEPOXIDE RESIN COMPOSITION CONTAIN POLYSULPHIDE COMPOUND  
MERCAPTAN GROUP AMINE REACT DILUTE ELASTIC ADHESIVE

DERWENT-CLASS: A21 A26 A81 G03 Q63

CPI-CODES: A05-A02; A05-J05; A07-A03; A07-A03B; A08-D03; A12-A05; A12-A05C;  
A12-H09; G03-B02E; G03-B02E2;

## ⑫ 公開特許公報(A)

平3-273021

⑤Int. Cl.<sup>5</sup>C 08 G 59/30  
59/56  
59/66

識別記号

NHR  
NJD  
NJK

庁内整理番号

8416-4J  
8416-4J  
8416-4J※

④公開 平成3年(1991)12月4日

審査請求 未請求 請求項の数 4 (全10頁)

④発明の名称 エポキシ樹脂組成物

②特 願 平2-232698

②出 願 平2(1990)9月3日

優先権主張 ③平2(1990)2月15日③日本(JP)③特願 平2-34694

⑦発 明 者 蔵 本 博 義 千葉県市原市千種海岸2番3 東レチオコール株式会社千  
葉工場内⑦発 明 者 大 野 勝 巳 千葉県市原市千種海岸2番3 東レチオコール株式会社千  
葉工場内⑦発 明 者 勝 畑 勝 彦 千葉県市原市千種海岸2番3 東レチオコール株式会社千  
葉工場内⑦出 願 人 東レチオコール株式会 千葉県浦安市美浜1丁目8番1号 東レビル  
社⑦代 理 人 弁理士 高石 橘馬  
最終頁に続く

## 明 細 書

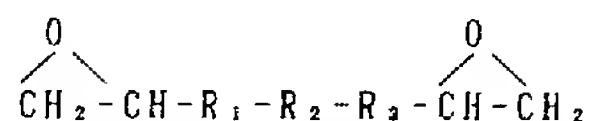
物。

## 1. 発明の名称

エポキシ樹脂組成物

## 2. 特許請求の範囲

## (1)(a)一般式



(ただし、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>はビスフェノール骨格を  
含む有機基であり、R<sub>3</sub>は-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OCH<sub>2</sub>OCH<sub>2</sub>C  
H<sub>2</sub>-S<sub>m</sub>)-で示されるポリサルファイド骨格

(ただし、mは1～3で、ポリサルファイド  
骨格中のSの平均含有量を表し、nは1～50  
で、1分子中におけるポリサルファイド骨格  
の平均含有量を表す。)である。)で示され  
るポリサルファイド変性エポキシ樹脂、

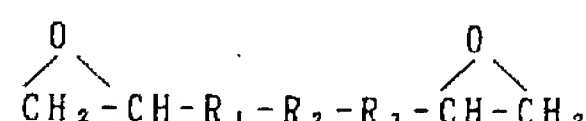
(b)末端にメルカプタン基を有するポリサルファ  
イド化合物、及び

(c)アミン類

を含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成

(2)請求項1に記載のエポキシ樹脂組成物において、  
さらに(d)末端にエポキシ基を有する反応性稀釈  
剤を含有することを特徴とするエポキシ樹脂組  
成物。

## (3)(a)一般式



(ただし、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>はビスフェノール骨格を  
含む有機基であり、R<sub>3</sub>は-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OCH<sub>2</sub>OCH<sub>2</sub>C  
H<sub>2</sub>-S<sub>m</sub>)-で示されるポリサルファイド骨格

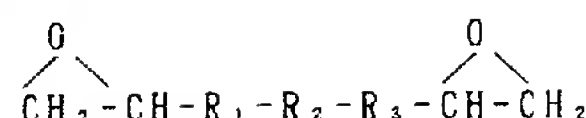
(ただし、mは1～3で、ポリサルファイド  
骨格中のSの平均含有量を表し、nは1～50  
で、1分子中におけるポリサルファイド骨格  
の平均含有量を表す。)である。)で示され  
るポリサルファイド変性エポキシ樹脂、

(b)末端にメルカプタン基を有するポリサルファ  
イド化合物、及び

(c)アミン類

を含有することを特徴とする弾性接着剤組成物。

## (4)(a) 一般式



(ただし、 $\text{R}_1$ 及び $\text{R}_3$ はビスフェノール骨格を含む有機基であり、 $\text{R}_2$ は $-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OCH}_2\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{S})_m-$ で示されるポリサルファイド骨格

(ただし、 $m$ は1～3で、ポリサルファイド骨格中のSの平均含有量を表し、 $n$ は1～50で、1分子中におけるポリサルファイド骨格の平均含有量を表す。)である。)で示されるポリサルファイド変性エポキシ樹脂、

(b) 末端にメルカプタン基を有するポリサルファイド化合物、及び

(c) アミン類

を含有することを特徴とする制振材用組成物。

## 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明はエポキシ樹脂組成物に関し、特に各種被着体に強力に接着し、弾性に優れ、適度な強さをもつので弾性接着剤組成物として有用であり、

げをした金属、あるいは、コンクリート、プレキャストコンクリート、ALCパネルなどを使用する場合、接着剤の強度が大きすぎると、接着強度が被着体の局所の引張り強さより大きくなり、被着体の表面または被着体の一部が破壊する。従って、弾性接着剤の場合、強度は余り大きすぎないことが必要とされる。

一方、風圧、地震、機械などによる構造物の振動、変形等を効果的に吸収する目的で各種の制振材(例えば通常のビスフェノール型エポキシ樹脂をベースとしたもの等)が検討されている。しかし、通常のビスフェノール型エポキシ樹脂をベースとした制振材では、損失係数が一定値以上となる温度範囲は限られており、制振材の使用温度範囲が狭く、室温付近での損失係数が低く、十分な制振性を発揮できないという問題がある。

従って、本発明の目的は、各種被着体に対する接着力が非常に強く、弾性に優れるとともに、適度な強度をもった弾性接着剤として好適な性能を有し、しかも、室温付近での制振特性に優れた制

しかも室温を中心とした幅広い温度範囲で高層建築物などの振動を効果的に防止する制振材用組成物として有用であるエポキシ樹脂組成物に関する。

(従来技術及び発明が解決しようとする課題)

エポキシ樹脂は、接着性、耐薬品性、耐久性などに優れ、しかも各種の被着体との濡れ性が良いことから、金属、プラスチック、木材、ガラス、コンクリートなどの接着剤として広く用いられている。

温度変化や吸湿度の変化による被着体自体あるいは被着体どうし間の伸縮や、風圧、地震、機械などによる振動変形が発生するところに使用される弾性接着剤は、被着体によく接着し、しかもいろいろな被着体の動きに追従する必要があるので、接着性がよく伸びが大きなものが必要とされる。しかしながら、通常ビスフェノール型エポキシ樹脂を使用した接着剤は、硬化後、伸びの少ない硬化物となるので、伸びの大きな接着剤を得ることは困難である。

また、被着体として、耐候性鋼などの表面仕上

振材として良好な性能を有するエポキシ樹脂組成物を提供することである。

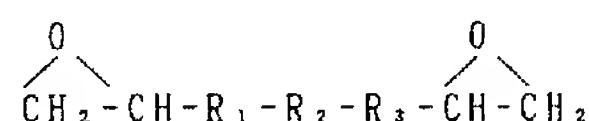
本発明のもう一つの目的はかかるエポキシ樹脂組成物からなる弾性接着剤組成物及び制振材用組成物を提供することである。

(課題を解決するための手段)

上記目的に鑑み鋭意研究の結果、本発明者らは、特定のポリサルファイド変性エポキシ樹脂、末端にメルカプタン基を有するポリサルファイド化合物及びアミン類を含むエポキシ樹脂組成物は、各種被着体に強力に接着し、弾性に優れているとともに、適度な強さを持ち、しかも、広い温度範囲で高い損失係数を有することを見出し、本発明に想到した。

すなわち、本発明のエポキシ樹脂組成物は、

(a) 一般式



(ただし、 $\text{R}_1$ 及び $\text{R}_3$ はビスフェノール骨格を含む有機基であり、 $\text{R}_2$ は $-(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OCH}_2\text{OCH}_2\text{CH}_2-\text{S})_m-$

。)-で示されるポリサルファイド骨格

(ただし、mは1～3で、ポリサルファイド骨格中のSの平均含有量を表し、nは1～50で、1分子中におけるポリサルファイド骨格の平均含有量を表す。)である。)で示されるポリサルファイド変性エポキシ樹脂、

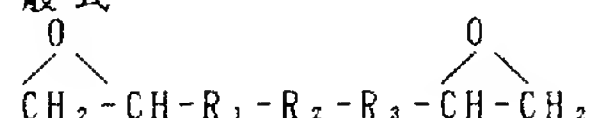
(b)末端にメルカプタン基を有するポリサルファイド化合物、及び

(c)アミン類

を含有することを特徴とする。

また、本発明の弾性接着剤組成物は、

(a)一般式



(ただし、R<sub>1</sub>及びR<sub>3</sub>はビスフェノール骨格を含む有機基であり、R<sub>2</sub>は-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OCH<sub>2</sub>OCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-S<sub>m</sub>)-で示されるポリサルファイド骨格

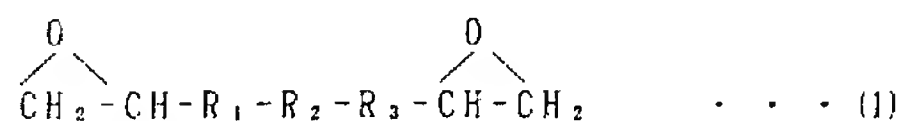
(ただし、mは1～3で、ポリサルファイド骨格中のSの平均含有量を表し、nは1～50で、1分子中におけるポリサルファイド骨格の平均

(c)アミン類

を含有することを特徴とする。

本発明を以下詳細に説明する。

本発明において使用する(a)ポリサルファイド変性エポキシ樹脂は、下記一般式(1)により表されるものである。



上記一般式(1)中のR<sub>1</sub>及びR<sub>3</sub>はビスフェノール骨格を含む有機基であり、R<sub>2</sub>はポリサルファイド骨格である。

上記ビスフェノール骨格を含む有機基R<sub>1</sub>、R<sub>3</sub>としては、例えばビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールAD型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、ハロゲン化ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ハロゲン化ビスフェノールF型エポキシ樹脂などと同様または類似の分子構造を含むものを挙げることができる。

また、上記ポリサルファイド骨格R<sub>2</sub>は下記一般

含有量を表す。)である。)で示されるポリサルファイド変性エポキシ樹脂、

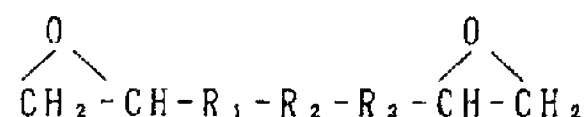
(b)末端にメルカプタン基を有するポリサルファイド化合物、及び

(c)アミン類

を含有することを特徴とする。

さらに、本発明の制振材用組成物は、

(a)一般式

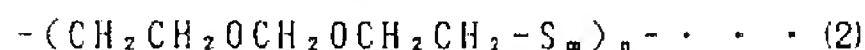


(ただし、R<sub>1</sub>及びR<sub>3</sub>はビスフェノール骨格を含む有機基であり、R<sub>2</sub>は-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OCH<sub>2</sub>OCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-S<sub>m</sub>)-で示されるポリサルファイド骨格

(ただし、mは1～3で、ポリサルファイド骨格中のSの平均含有量を表し、nは1～50で、1分子中におけるポリサルファイド骨格の平均含有量を表す。)である。)で示されるポリサルファイド変性エポキシ樹脂、

(b)末端にメルカプタン基を有するポリサルファイド化合物、及び

式(2)により示される。



上記一般式(2)において、Sの平均含有量mの範囲は1～3であり、好ましくは1.5～2.5である。さらにポリサルファイド骨格の平均含有量nの範囲は1～50であり、好ましくは2～30である。ポリサルファイド骨格の平均含有量nが1未満であると、通常のビスフェノール型エポキシ樹脂と同等になり、またnが50を超えると粘度が高くなり、使用しづらくなる。

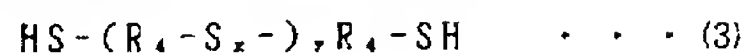
このようなポリサルファイド変性エポキシ樹脂としては、25℃における粘度が3000ポイズ以下のものが好ましく、例えば、東レチオコール(株)製「FLEP-10」、「FLEP-50」、「FLEP-60」、「FLEP-80」等を挙げることができる。

本発明では、上述したポリサルファイド変性エポキシ樹脂の他に、末端にメルカプタン基を有するポリサルファイド化合物及びアミン類が配合される。

本発明で使用される(b)末端にメルカプタン基を

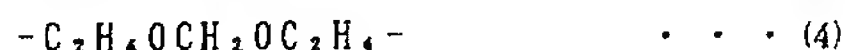


有するポリサルファイド化合物は、通常、下記の化学構造式(3)で表される。



(ここでxの平均値は1～3であり、yは1～50である。またR<sub>4</sub>は、エーテル基を1つ以上含む炭素数が1～10の有機残基である。)

好ましくは、上記一般式(3)中のR<sub>4</sub>は下記一般式(4)により示されるアルキレンエーテル基である。



このようなポリサルファイド化合物としては、25℃における粘度が2000ポイズ以下のものが好ましく、例えば、東レチオコール(株)製の「チオコールLP-70」、「チオコールLP-3」、「チオコールLP-56」、「チオコールLP-55」、「チオコールLP-12」、「チオコールLP-32」、「チオコールLP-2」、「チオコールLP-31」等を挙げることができる。

本発明において、上記(b)ポリサルファイド化合物の使用量は、その種類により変化するが、(a)ポリサルファイド変性エポキシ樹脂100重量部に対

して5～200重量部であるのが好ましい。ポリサルファイド化合物の使用量が5重量部未満の場合、伸びが少なく硬い硬化物となるので好ましくない。またポリサルファイド化合物の使用量が200重量部を超えると、組成物の粘度が低下し、組成物の自重による垂れが発生するので好ましくない。

本発明で使用する(c)アミン類としては、例えば、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、イソフォロンジアミン、1,3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、m-キシレンジアミン、1,2-アミノシクロヘキサン、シクロヘキシルアミン、ビス(4-アミノ-3-メチルシクロヘキシル)メタン、m-フェニレンジアミン、N-シアノエチルキシリレンジアミン、N-アミノエチルピペラジン、N-ベンジルエチレンジアミン、1-(2-アミノエチル)ピペラジン、ジメチルアミノメチルフェノール、2,4,6-トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール、N-シアノエチルキシリレンジアミン、メントレンジアミン、エポキシ樹脂を過剰なアミンと

反応させて製造されるポリアミンエポキシ樹脂アダクト、ポリアミン-エチレンオキサイドアダクト、ポリアミン-プロピレンオキサイドアダクト、シアノエチル化ポリアミン、主鎖がシリコンであるジアミン、または、ポリアミン類とフェノール類及びアルデヒド類等とを反応させて得られる脱水縮合物、2-エチル-4-メチルイミダゾールなどのイミダゾール類、変性ポリアミン等が挙げられる。変性ポリアミンとしては、例えば旭電化工業(株)製の「アデカハードナーEH-220」、「アデカハードナーEH-227」、「アデカハードナーEH-230」及び「アデカハードナーEH-531」、エイ・シー・アイ・ジャパン・リミテッド製の「アンカミンMCA」、日本チバガイギー(株)製の「アラルダイドX1101」、油化シェルエポキシ(株)製の「エピキュア3012」、「エポメートB-002W」、「エポメートN-001」及び「エポメートRX-3」、住友化学工業(株)製の「スミキュア-AF」、大都産業(株)製の「ダイトクラールHD-801CB」、「ダイトクラールU-4075」、「ダイトクラールX-1436」、「ダイトクラ

ールX-1942」及び「ダイトクラールX-2392」、富士化成工業(株)製の「フジキュア#5420」及び「フジキュア#5001」、三洋化成工業(株)製の「リアクトCA-101」及び「リアクトCA-681」などが挙げられる。

本発明において、上記(c)アミン類の使用量は、アミン類の活性水素当量により変化する。アミン類の使用量は、ポリサルファイド変性エポキシ樹脂のエポキシ当量とアミン類の活性水素当量とから計算される化学当量(エポキシ基1モル当りアミン類の活性水素1モル)の0.5～2.0倍が好ましい。上記化学当量の2倍を超えるアミン類を使用した場合、あるいは、化学当量の0.5倍未満のアミン類を使用した場合は、ポリサルファイド変性エポキシ樹脂とアミン類との反応が不完全となり、接着性、耐薬品性などが悪化するので好ましくない。

本発明の弾性接着剤組成物は、上述の(a)ポリサルファイド変性エポキシ樹脂、(b)ポリサルファイド化合物、(c)アミン類の他に、さらに必要に応じ



て(d)末端にエポキシ基を有する反応性希釈剤を含有することができる。

末端にエポキシ基を有する反応性希釈剤は、好ましくは、25℃における粘度が5ポイズ以下のものである。このような反応性希釈剤としては、例えばn-ブチルグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル、スチレンオキシド、フェニルグリシジルエーテル、クレジルグリシジルエーテル、ブチルフェニルグリシジルエーテル、グリシジルメタクリレート、ジグリシジルエーテル、ビニルシクロヘキセンモノエポキシド、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、ブタンジオールジグリシジルエーテル、ビニルシクロヘキセンジエポキシド、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、ジグリシジルアニリン、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテル、旭電化工業(株)製の「アデカグリシロールED-501」、「アデカグリ

シロールED-502」、「アデカグリシロールED-503」、「アデカグリシロールED-505」及び「アデカグリシロールED-506」、油化シェルエポキシ(株)製の「カーデュラE」等が挙げられる。

上記反応性希釈剤の使用量は、反応性希釈剤の種類により変化するが、ポリサルファイド変性エポキシ樹脂100重量部に対して50重量部以下が好ましい。反応性希釈剤の使用量が50重量部を超えると、組成物の粘度が低下し、組成物の自重による垂れが発生するので好ましくない。

本発明の弾性接着剤組成物は、上記各成分以外に、さらに必要に応じて、珪砂、アルニミウム粉、カーボンブラック、ウォラストナイト、カオリン、クレー、酸化チタン、酸化鉄、シリカ、シアニブルー、コaltar、タルク、炭酸カルシウム、亜鉛華、ベントナイト、ポリエチレン粉末、マイカ、クロム酸鉛、ベンガラ、ニッケルスラグ、水酸化アルニミウム、有機ベントナイト、雲母粉、黄鉛、亜鉛、群青、酸化クロム、ステアリン酸亜鉛、石英粉、マイカ、沈澱性硫酸バリウム、鉄黒、

鱗片状酸化鉄などの充填材、増量材、補強材、顔料、たれ止め剤、難燃剤などを添加することができる。

#### 〔作用〕

上述したように、本発明のエポキシ樹脂組成物は、(a)ポリサルファイド変性エポキシ樹脂と、(b)末端にメルカプタン基を有するポリサルファイド化合物と、(c)アミン類とを配合しているため、ポリサルファイド変性エポキシ樹脂のもつ良好な耐薬品性、接着性及び濡れ性を有するとともに、ポリサルファイド化合物の働きにより弾性が向上し、さらにポリサルファイド変性エポキシ樹脂とポリサルファイド化合物の相乗効果により、室温を中心とした広い温度範囲にわたって大きな制振効果を発揮する。

#### 〔実施例〕

本発明を以下の実施例によりさらに詳細に説明する。

##### 実施例1

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂(東レチオ

コール(株)製、“FLEP-50”)91重量部と、ポリサルファイド化合物(東レチオコール(株)製、“チオコールLP-3”)50重量部と、変性ポリアミン(大都産業(株)製、“ダイトクラールX-2392”)24重量部と、反応性希釈剤としてフェニルグリシジルエーテル(長瀬産業(株)製、“デナコールEX-141”)9重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

##### 実施例2

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂(東レチオコール(株)製、“FLEP-50”)83重量部と、ポリサルファイド化合物(東レチオコール(株)製、“チオコールLP-3”)50重量部と、変性ポリアミン(大都産業(株)製、“ダイトクラールX-2392”)26重量部と、反応性希釈剤(旭電化工業(株)製、“アデカグリシロールED-502”)17重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

実施例 3

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂（東レチオコール㈱製、“FLEP-50”）100重量部と、ポリサルファイド化合物（東レチオコール㈱製、“チオコールLP-3”）100重量部と、変性ポリアミン（油化シェルエポキシ㈱製、“エポメートN-001”）33重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

実施例 4

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂（東レチオコール㈱製、“FLEP-50”）100重量部と、ポリサルファイド化合物（東レチオコール㈱製、“チオコールLP-3”）100重量部と、変性ポリアミン（大都産業㈱製、“ダイトクラールX-2392”）22重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

実施例 5

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂（東レチオ

コール㈱製、“FLEP-10”）83重量部と、ポリサルファイド化合物（東レチオコール㈱製、“チオコールLP-3”）50重量部と、変性ポリアミン（大都産業㈱製、“ダイトクラールX-2392”）26重量部と、反応性希釈剤としてフェニルグリシジルエーテル（長瀬産業㈱製、“デナコールEX-141”）17重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

実施例 6

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂（東レチオコール㈱製、“FLEP-60”）91重量部と、ポリサルファイド化合物（東レチオコール㈱製、“チオコールLP-3”）50重量部と、変性ポリアミン（大都産業㈱製、“ダイトクラールX-2392”）30重量部と、反応性希釈剤としてフェニルグリシジルエーテル（長瀬産業㈱製、“デナコールEX-141”）9重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

実施例 7

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂（東レチオコール㈱製、“FLEP-50”）91重量部と、ポリサルファイド化合物（東レチオコール㈱製、“チオコールLP-55”）50重量部と、変性ポリアミン（大都産業㈱製、“ダイトクラールX-2392”）24重量部と、反応性希釈剤としてフェニルグリシジルエーテル（長瀬産業㈱製、“デナコールEX-141”）9重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

比較例 1

ビスフェノールA型エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ㈱製、“エピコート828”）83重量部と、変性ポリアミン（大都産業㈱製、“ダイトクラールX-2392”）40重量部と、フェニルグリシジルエーテル（長瀬産業㈱製、“デナコールEX-141”）17重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

比較例 2

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂（東レチオコール㈱製“FLEP-50”）100重量部と、変性ポリアミン（大都産業㈱製、“ダイトクラールX-2392”）22重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

比較例 3

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂（東レチオコール㈱製“FLEP-50”）100重量部と、変性ポリアミン（油化シェルエポキシ㈱製、“エポメートN-001”）33重量部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

比較例 4

ポリサルファイド変性エポキシ樹脂（東レチオコール㈱製“FLEP-50”）91重量部と、変性ポリアミン（大都産業㈱製、“ダイトクラールX-239

2")24重量部と、フェニルグリシジルエーテル  
(長瀬産業㈱製、"デナコール EX-141") 9重量  
部と、添加剤として炭酸カルシウム40重量部と、  
有機ベントナイト10重量部と、カーボン1重量部  
とを混合して、エポキシ樹脂組成物とした。

#### 引張り物性 (H型物性) の測定

上記各実施例及び比較例のエポキシ樹脂組成物  
の引張り物性 (H型物性) を評価するために、被  
着体として、JIS A 5758(1986)「建築用シーリン  
グ材」で規定されたアルミニウム板を用意した。  
この2枚の被着体とスペーサーとを組み合わせ、  
12mm×12mm×50mmのスペースをつくり、弾性接着  
剤組成物で2枚の被着体を接着した (接着面積、  
12mm×50mm)。20℃で7日間硬化させた後に、引  
張り物性 (H型物性) の測定を行った。測定は、  
JIS A 5758(1986)「建築用シーリング材」に準拠  
して行った。

測定結果をエポキシ樹脂組成物の組成とともに  
に第1表に示す。

なお、第1表の破壊状態のうち、凝集破壊とは

弾性接着剤が破壊したことを示す。凝集破壊の場  
合は、弾性接着剤と被着体との界面で剥離した場  
合 (これを接着破壊という) に比較して、接着性  
が良好なことを示している。一般に、接着剤の性  
能が悪い場合には、被着体を接着後、早期に接着  
剤と被着体との界面から剥離するのに対し、接着  
剤の性能が良い場合には、長期間の使用によっ  
ても接着剤と被着体との界面から剥離しない。さら  
に動きのある被着体でも相当な年月を経ない限り、  
凝集破壊が発生することはない。

第 1 表

例 No.			実 施 例							比 較 例			
			1	2	3	4	5	6	7	1	2	3	4
組 成 ( 重 量 部 )	ポリサルファイド 変性エポキシ樹脂	F L E P - 10	—	—	—	—	83	—	—	—	—	—	—
		F L E P - 50	91	83	100	100	—	—	91	—	100	100	91
		F L E P - 60	—	—	—	—	—	91	—	—	—	—	—
	ビスフェノール 型エポキシ樹脂	エピコート828	—	—	—	—	—	—	—	83	—	—	—
	ポリサルファイド化合物	チオール LP-3	50	50	100	100	50	50	—	—	—	—	—
		チオール LP-55	—	—	—	—	—	—	50	—	—	—	—
	アミン類	ダイクラール X-2392	24	26	—	22	26	30	24	40	22	—	24
		エポネート N-001	—	—	33	—	—	—	—	—	—	33	—
	反応性希釈剤	フェニルグリシジルエーテル	9	—	—	—	17	9	9	17	—	—	9
		アデカグリシロール ED-502	—	17	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	炭 酸 カ ル シ ウ ム		40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	有 機 ベ ン ト ナ イ ト		10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
	カ ー ボ ン		1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
H 型 物 性	破 断 強 度 (kg/cm <sup>2</sup> )		14	8	4	9	7	22	25	7	70	82	58
	伸 び (%)		110	110	240	160	340	125	115	5	30	15	130
	接 着 部 の 破 壊 状 態		凝集 破壊	凝集 破壊	凝集 破壊	凝集 破壊	凝集 破壊	凝集 破壊	凝集 破壊	凝集 破壊	凝集 破壊	凝集 破壊	凝集 破壊

第1表より明らかなように、本発明のエポキシ樹脂組成物は硬化物の伸びが100%以上あり、比較例1～3の硬化物に比べて伸びが大きく、しかも凝集破壊となることが示すように接着性が良好であるので、いろいろな被着体の動きに追従することができる。また、本発明のエポキシ樹脂組成物は硬化物の強度が4～25kg/cm<sup>2</sup>であり、比較例2～4の組成物の硬化物のように硬化物の強度が強すぎないので、被着体の表面又は被着体の一部が破壊するおそれがない。

#### 制振特性の評価（損失係数の測定）

実施例1、3及び5のエポキシ樹脂組成物の制振特性を評価するために、損失係数を下記の方法により測定した。

実施例1、3及び5のエポキシ樹脂組成物を20℃で7日間硬化させた後に、硬化物から幅8mm、長さ約40mmの試験片を切出し、-100℃～+50℃の温度範囲での動的粘弾性を、オリエンティク（株）製“Rheovibron DDV-Ⅲ-EA”を用いて、周波数110Hz、昇温速度2℃/分の条件で測定し、損失

係数（tan δ）を求めた。また、比較例1のエポキシ樹脂組成物の損失係数を室温～+150℃の温度範囲において、同様の方法により測定した。

測定結果をエポキシ樹脂組成物の組成とともに第2表に示す。

第 2 表

例 No.			実 施 例			比 較 例
			1	3	5	1
組 成 部 （ 重 量 部 ）	ポリサルファイド 変性エポキシ樹脂	F L E P - 10	—	—	83	—
		F L E P - 50	91	100	—	—
		F L E P - 60	—	—	—	—
	ビスフェノール型エポキシ樹脂	エピコート828	—	—	—	83
	ポリサルファイド化合物	チオール LP-3	50	100	50	—
	アミン類	ダイクラール X-2392	24	—	26	40
		エポメート N-001	—	33	—	—
	反応性希釈剤	フェニルグリシジルエーテル	9	—	17	17
	炭 酸 カ ル シ ウ ム		40	40	40	40
	有 機 ベ ン ト ナ イ ト		10	10	10	10
制 振 特 性	カ ー ボ ン		1	1	1	1
	損失係数(tan δ)が0.1以上の温度範囲		-70℃～ +40℃以上	-45℃～ +50℃以上	-60℃～ +50℃以上	+51℃～ +103℃
	損失係数(tan δ)が0.2以上の温度範囲		-60℃～ +40℃以上	-31℃～ +50℃以上	-53℃～ +50℃以上	+53℃～ +99℃
	損失係数(tan δ)が0.4以上の温度範囲		-39℃～ +35℃	-19℃～ +33℃	-4℃～ +50℃	+57℃～ +93℃

第2表に示したように、実施例1, 3及び5のエポキシ樹脂組成物においては、損失係数( $\tan \delta$ )が0.2以上の範囲が、 $-30^{\circ}\text{C} \sim +40^{\circ}\text{C}$ より広がった。特に室温付近( $+10^{\circ}\text{C} \sim +30^{\circ}\text{C}$ )では、損失係数( $\tan \delta$ )が0.4以上という高い値を示し、後述の比較例1と比べて室温で高い損失係数( $\tan \delta$ )の値を示すのがわかる。

これに対し、エポキシ樹脂と硬化剤とからなる従来の制振材組成物(比較例1)においては、損失係数( $\tan \delta$ )が0.2以上の温度範囲が $+53 \sim +99^{\circ}\text{C}$ であり、室温付近( $+10^{\circ}\text{C} \sim +30^{\circ}\text{C}$ )での損失係数( $\tan \delta$ )は0.1未満であった。

#### 〔発明の効果〕

以上に詳述した通り、本発明のエポキシ樹脂組成物は、ポリサルファイド骨格を有するエポキシ樹脂と、ポリサルファイド化合物と、アミン類とを含有しているため、各種被着体に対して強力な接着力を有するとともに、耐薬品性、耐久性、水密性、気密性に優れている。

また、本発明のエポキシ樹脂組成物は、弾性に

優れているので、温度変化や吸湿度の変化による被着体の伸び縮みや、風圧、地震、機械などによる振動変形に追従することができる。

さらに、本発明のエポキシ樹脂組成物は、適度の強度を持っているので、被着体の表面又は被着体の一部を破壊するおそれがない。

さらに、本発明のエポキシ樹脂組成物は、室温を中心とした幅広い温度範囲で高い損失係数を有するので、幅広い温度範囲で高層建築物などの振動を硬化的に防止することができる。

このような本発明のエポキシ樹脂組成物は、アルニミウム、ステンレス、硫酸アルマイト、電解着色アルニミウム、耐候性鋼などの金属や、ガラス、タイル、石材、コンクリート、プレキャストコンクリート、ALCパネル、セラミックスなどの無機材料の接着剤として、また土木・建築用等の各種のシーリング材などとして、好適である。

また本発明のエポキシ樹脂組成物は、建築用制振材のみならず、スポーツ用品用制振材、楽器用制振材、自動車用制振材、船舶用制振材、精密機

器用制振材、工業用制振材、土木建築用制振材など各種用途に使用することができる。

出 願 人      東レチオコール株式会社  
代 理 人      弁理士      高 石      橋 馬

第1頁の続き

⑤Int. Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号
C 09 J 163/00	J F L	8416-4 J
	J F M	8416-4 J
// F 16 F 15/02	Q	7712-3 J